



PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C08L 23/10, C08K 3/34, B29C 45/00</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/64972</p> <p>(43) 国際公開日 2000年11月2日(02.11.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP00/02665</p> <p>(22) 国際出願日 2000年4月24日(24.04.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11/118001 1999年4月26日(26.04.99) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 住友化学工業株式会社 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED)[JP/JP] 〒541-8550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号 Osaka, (JP) トヨタ自動車株式会社 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP] 〒471-8571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 Aichi, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 下條盛康(SHIMOJO, Moriyasu)[JP/JP] 大川健一(OHKAWA, Kenichi)[JP/JP] 神崎 進(KANZAKI, Susumu)[JP/JP] 〒299-0195 千葉県市原市姉ヶ崎海岸5-1 住友化学工業株式会社内 Chiba, (JP)</p>		<p>永井隆之(NAGAI, Takayuki)[JP/JP] 野村孝夫(NOMURA, Takao)[JP/JP] 松田雅敏(MATSUDA, Masatoshi)[JP/JP] 岩井久幸(IWAI, Hisayuki)[JP/JP] 〒471-8571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内 Aichi, (JP)</p> <p>(74) 代理人 浅村 皓, 外(ASAMURA, Kiyoshi et al.) 〒100-0004 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 新大手町ビル331 Tokyo, (JP)</p> <p>(81) 指定国 AU, CN, KR, SG, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>
<p>(54) Title: <u>THERMOPLASTIC RESIN COMPOSITION AND INJECTION-MOLDED OBJECT THEREOF</u></p> <p>(54) 発明の名称 熱可塑性樹脂組成物及びその射出成形体</p> <p>(57) Abstract A thermoplastic composition which is obtained by melt-kneading (1) 55 to 75 wt.% crystalline polypropylene resin together with (2) 10 to 30 wt.% elastomer comprising either a rubber containing a vinylaromatic compound or a mixture thereof with an ethylene/α-olefin random copolymer rubber and (3) 15 to 25 wt.% talc having an average particle diameter of 3 μm or smaller. The composition satisfies specific requirements with respect to: the long period obtained by X-ray small-angle scattering attributable to the vinylaromatic-containing rubber in a blend obtained by melt-kneading the ingredients (1) and (2); the shape and diameter of the elastomer particles present near the polypropylene/elastomer interface in the blend; and the difference between the glass transition point of the ingredient (1) and that of the composition attributable to the crystalline polypropylene homopolymer parts. The composition has a satisfactory balance between impact resistance and rigidity and has excellent injection moldability.</p>		

(57)要約

(1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂 55～75重量%、(2) ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー 10～30重量%、及び(3) 平均粒径 $3\mu\text{m}$ 以下のタルク 15～25重量%とを熔融混練して得られる熱可塑性組成物。

(1) と(2) とを熔融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期、及びその際のポリプロピレンとの界面付近にあるエラストマー粒子の形態と粒子径、及び(1) と組成物の結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差が特定条件を満足する。

上記組成物は、耐衝撃性及び剛性度のバランスが良好で射出成形性に優れる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

熱可塑性樹脂組成物及びその射出成形体

5 技術分野

本発明は、剛性、耐衝撃性、成形加工性に優れた特徴を有する熱可塑性樹脂組成物及びこれを射出成形方法により成形した寸法安定性の優れた射出成形体、特に自動車内外装用射出成形体に関するものである。

背景技術

- 10 近年、自動車用材料は、軽量化、低コスト化等からみてプロピレンーエチレンブロック共重合体が使用されている。しかし、従来のプロピレンーエチレンブロック共重合体材料は衝撃強度が低く、この衝撃強度を改良するためにプロピレンーエチレンブロック共重合体にエチレンープロピレン共重合体ゴム、エチレンー α -オレフィン共重合体ゴム等を配合することが提案されている。ところが、エチレンープロピレン共重合体ゴム、エチレンー α -オレフィン共重合体ゴム等を配合すると衝撃強度は改良されるが、逆に剛性度及び熱変形温度等の熱的性質が低下し、自動車内外装用材料としては難点を有する。これを解決するために、更に炭酸カルシウム、硫酸バリウム、マイカ、結晶性ケイ酸カルシウム及びタルク等の無機充填剤を加えて配合することが提案されている。
- 15 20 例えば、特開昭51-136735号公報には、プロピレンをベースとするエチレンブロック共重合体、エチレンープロピレンラバー及びタルクからなる熱可塑性樹脂組成物が開示され、その物性が報告されている。また、エチレンープロピレンゴムと同様にスチレンーブタジエンゴムを使用できることが一般的に記載されているが、そのゴムを熔融混練した時の構造や状態等、及びそのゴムの分子
- 25 量分布、メルトフローレート、スチレン含量等については開示がなされていない。
- また、特開平6-192500号公報には、プロピレンーエチレンブロック共重合体及びエチレンー1-ヘキセン共重合体からなるプロピレン系樹脂組成物が開示されている。更に、その他の配合成分として一般に樹脂組成物の製造方法において用いられている補助添加成分であるタルク等、スチレンーブタジエン系ゴ

ム等のブレンドが記載されている。しかし、そのゴムを熔融混練した時の構造や状態等、及びそのゴムの分子量分布、メルトフローレート、スチレン含量等については開示がなされていない。

また、特開平6-192506号公報には、ポリプロピレン、エチレン-1-
5 オクテンランダム共重合体及びタルクからなるポリプロピレン組成物が開示されている。しかし、ビニル芳香族化合物含有ゴムを使用することについては開示がなされていない。

上述のように、従来のプロピレン-エチレンブロック共重合体、エチレン-プロピレン共重合体ゴム又はエチレン- α -オレフィン共重合体ゴム等及び無機充填剤からなる樹脂組成物は、自動車内外装用材料としては、衝撃強度と剛性のバ
10 ランス及び射出成形加工性の点で未だ不十分であった。また、スチレン-ブタジエン系ゴム等を用いる技術も不十分であった。

発明の開示

かかる状況において本発明は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマー及びタルクからなる組成物において、物性の点においては内外装用材料として要求
15 される衝撃強度及び剛性度を満足し、かつ、射出成形加工性に優れたポリプロピレン系樹脂組成物及びその射出成形体、特に自動車内外装用射出成形体を提供することを目的とする。

本発明者は、特定の結晶性ポリプロピレン系樹脂を主体として用い、これに特定
20 のエラストマー成分及びタルクを特定の組成比で熔融混練することにより、上記目的を満足するポリプロピレン系樹脂組成物及びその射出成形体を得られることを見出し本発明に到達した。

すなわち、本発明は、

(1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂：55～75重量%、(2) ビニル芳香族
25 化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー：10～30重量%、及び(3) 平均粒径3 μ m以下のタルク：15～25重量%とを熔融混練してなる組成物であって下記(a)～(c)の条件を満足する熱可塑性樹脂組成物に係るものである。

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビ

ニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12~24 nmであること。

- (b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスである結晶性ポリプロピレン系樹脂の界面付近にあるエラストマー粒子がマイクロ相分離し粒子の形態をとり、その粒子径が30 nm以下であること。
- 5

- (c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g1})と結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)を熔融混練してなる組成物の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g2})の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)が、4.0~7.0℃であること。
- 10
- 15 また、本発明は上記のポリプロピレン系樹脂組成物を射出成形方法により成形してなる射出成形体に係るものである。

更に本発明は自動車内外装用射出成形体に係るものである。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

- 20 本発明の熱可塑性樹脂組成物は(1)結晶性ポリプロピレン系樹脂55~75重量%、(2)ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー10~30重量%、及び(3)平均粒径3 μ m以下のタルク15~25重量%とを熔融混練して得られる組成物である。
- 25 本発明で使用する結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とは、結晶性を有しておれば特に制限はなく、プロピレン単独重合体、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン- α -オレフィン共重合体等が挙げられる。 α -オレフィンは炭素原子数4以上であって、例えば、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、デセン等が挙げられる。

中でも、結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）としては、結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（１Ａ）又は上記の結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（１Ａ）と結晶性プロピレン単独重合体との混合物（１Ｂ）から選ばれた結晶性ポリプロピレンが好適に使用される。

- ５ ここに結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（１Ａ）とはプロピレン単独重合体部分（これを第１セグメントという。）とエチレンープロピレンランダム共重合体部分（これを第２セグメントという。）とからなる結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体である。

- 第１セグメントであるプロピレン単独重合体部分は、そのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法による重量平均分子量（Mw）／数平均分子量（Mn）比であるＱ値が好ましくは３．０～５．０、より好ましくは３．５～４．５である。更にその¹³C-NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率は好ましくは０．９８以上、より好ましくは０．９９以上である。また、その１３５℃テトラリン溶液の極限粘度 $[\eta]_p$ は好ましくは０．７～１．１ dl／g、より好ましくは０．８～１．０ dl／gである。
- １５

第１セグメントであるプロピレン単独重合体部分のＱ値が３．０未満の場合には流動性が悪化し、Ｑ値が５．０をこえると剛性と耐衝撃性のバランスにおいて好ましい結果が得られない場合がある。更にそのアイソタクチックペンタッド分率が０．９８未満では目的の剛性、耐熱性等を満足することが難しい場合がある。

- また、その極限粘度 $[\eta]_P$ が０．７ dl／g未満では耐衝撃性が低くなり、１．１ dl／gをこえると流動性が悪化する傾向がある。
- ２０

第２セグメントであるエチレンープロピレンランダム共重合体部分はその１３５℃テトラリン溶液の極限粘度 $[\eta]_{EP}$ が好ましくは５．０～８．０ dl／g、より好ましくは５．５～７．５ dl／gである。更にそのエチレン含量 $[(C_2')_{EP}]$ は好ましくは２５～３５重量％で、より好ましくは２７～３３重量％である。

２５

第２セグメントであるエチレンープロピレンランダム共重合体部分の極限粘度 $[\eta]_{EP}$ が５．０ dl／g未満では、剛性と耐衝撃性のバランスにおいて好ましい結果が得られない場合がある。また、８．０ dl／gを超えるとブツ部が発

生しやすくなり、面品質の点において好ましい結果が得られない場合がある。更にそのエチレン含量〔(C 2') EP〕が25重量%未満又は35重量%を越えると、組成物の耐衝撃性に関して好ましい結果が得られない場合がある。

また、エチレンープロピレンランダム共重合体部分（第2セグメント）とプロ
5 ピレン単独重合体部分（第1セグメント）の割合（第2セグメント／第1セグメント比）は、8／92～35／65重量%比が好ましい。

上記の結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（1A）と結晶性プロピ
レン単独重合体との混合物（1B）に用いられる結晶性プロピレン単独重合体と
は、第1セグメントであるプロピレン単独重合体部分と同じ様な物性を有するも
10 のであって、そのゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）法による
重量平均分子量（Mw）／数平均分子量（Mn）比であるQ値が3.0～5.0、
好ましくは3.5～4.5である。更にその¹³C-NMRにより計算されるアイ
ソタクチックペンタッド分率は好ましくは0.98以上、より好ましくは0.
99以上である。また、その135℃テトラリン溶液の極限粘度〔η〕_pは好ま
15 しくは0.7～1.1dl/g、より好ましくは0.8～1.0dl/gである。

結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（1A）と結晶性プロピレン単
独重合体との混合物（1B）に用いられる結晶性プロピレン単独重合体のQ値が
3.0未満の場合には流動性が悪化する傾向にあり、Q値が5.0をこえると剛
性と耐衝撃性のバランスにおいて好ましくない場合がある。更にそのアイソタク
20 チックペンタッド分率が0.98未満では目的の剛性、耐熱性等を満足することが
難しい場合がある。また、極限粘度〔η〕_pが0.7dl/g未満では耐衝撃
性が低くなる傾向があり、1.1dl/gをこえると流動性が悪化する傾向にあ
る。

このような結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）はチーグラ－・ナッタ触媒系及
25 び／又はメタロセン触媒系を用いて、バルク重合法、溶液重合法、スラリー重合
法又は気相重合法、あるいはこれらの重合法を任意に組み合わせて製造すること
ができる。

特に耐衝撃性が要求される用途に用いられるエチレンープロピレンブロック共
重合体は、第1工程でプロピレンを重合して第1セグメントである結晶性プロピ

レン単独重合体部分を製造し、次いで第2工程でエチレンとプロピレンを重合して第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダム共重合体部分を製造することにより得られた製造物が好ましい。

本発明の熱可塑性樹脂組成物において結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の含有量は組成物全体に対して55～75重量%が好ましい。

本発明で使用するビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)について以下説明する。

本発明のビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)とは、ビニル芳香族化合物重合体ブロックと共役ジエン系重合体ブロックからなるブロック共重合体であって、その共役ジエン部分の二重結合が80%以上水素添加され、好ましくは85%以上水素添加され、かつ、そのGPC法によるQ値が好ましくは2.5以下、より好ましくは2.3以下であり、ビニル芳香族化合物含有ゴム中のビニル芳香族化合物含量が好ましくは10～20重量%、より好ましくは12～19重量%であり、そのメルトフローレート(以下「MFR」と称する。)(JIS-K-6758、230℃)が好ましくは1～15g/10分、より好ましくは2～13g/10分であるビニル芳香族化合物含有ゴムである。

本発明におけるビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)は、オレフィン系共重合体ゴムもしくは共役ジエンゴムに、重合、反応等によりビニル芳香族化合物が結合しているゴム、例えば、スチレン-エチレン-ブテン-スチレン系ゴム(SEBS)、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン系ゴム(SEPS)、スチレン-ブタジエン系ゴム(SBR)、スチレン-ブタジエン-スチレン系ゴム(SBS)、スチレン-イソプレン-スチレン系ゴム(SIS)等のブロック共重合体又はこれらのゴム成分を水添したブロック共重合体等を挙げることができる。また、エチレン-プロピレン-非共役ジエン系ゴム(EPDM)にスチレン等のビニル芳香族化合物を反応させたゴムも好適に使用できる。

ビニル芳香族化合物含有ゴム(2A)中のビニル芳香族化合物含量が平均で10重量%未満又は20重量%を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)との親和性が低くなる傾向にあり、結果として耐衝撃性、剛性が低下する傾向にある。

本発明で使用するエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムとは、エチレンと α -オレフィンからなるランダム共重合体ゴムであり、そのようなゴムであれば特に制限はない。 α -オレフィンは炭素原子数3以上、好ましくは3-12であり、例えば、プロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン、ヘプテン、オクテン、デセン等が挙げられる。好ましくは、プロピレン、ブテン、ヘキセン、オクテンである。

ランダム共重合体ゴムとしては、エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム、エチレン-ヘキセンランダム共重合体ゴム、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム等が挙げられ、好ましくは、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)、エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)、エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム(2D)が挙げられる。

本発明で使用するエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)はGPC法によるQ値が好ましくは2.5以下、より好ましくは2.3以下である。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)中のオクテン含量は15~45重量%、好ましくは18~42重量%である。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴムのMFR(JIS-K-6758、190℃)は好ましくは1.0~15.0g/10分、より好ましくは、2~13g/10分である。

エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)のGPC法によるQ値が2.5を超えると剛性が低下する場合がある。エチレン-1-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)中のオクテン含量が15重量%未満では耐衝撃性に関して好ましくなく、45重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム(2B)のMFRが15g/10分を超えると耐衝撃性に関して好ましくなく、又1.0g/10分未満では結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)に対する分散が悪く耐衝撃性に関して好ましい結果が得られない。

本発明で使用するエチレン-1-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)はGPC法によるQ値が好ましくは2.7以下、より好ましくは2.5以下である。エチレン-1-ブテンランダム共重合体ゴム(2C)中のブテン含量は好ましくは

15～35重量%、より好ましくは17～33重量%である。エチレンーブテンランダム共重合体ゴム(2C)のMFR(JIS-K-6758、190℃)は好ましくは1～15g/10分、より好ましくは、2～13g/10分である。

エチレンーブテンランダム共重合体ゴム(2C)のGPC法によるQ値が2.

- 5 7を超えると剛性が低下する場合がある。エチレンーブテンランダム共重合体ゴム(2C)中のブテン含量が15重量%未満では耐衝撃性に関して好ましくなく、35重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレンーブテンランダム共重合体ゴムのMFRが1g/10分未満では剛性及び耐衝撃性に関して好ましくなく、また15g/10分を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂
- 10 (1)に対する分散が悪く耐衝撃性に関して好ましい結果が得られない場合がある。

- 本発明で使用するエチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)はGPC法によるQ値が好ましくは2.7以下、より好ましくは2.5以下である。エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)中のプロピレン含量は20～
- 15 30重量%、好ましくは22～28重量%である。エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のMFR(JIS-K-6758、190℃)は好ましくは1～15g/10分、より好ましくは2～13g/10分である。

- エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のGPC法によるQ値が2.7を超えると剛性が低下する。エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム
- 20 (2D)中のプロピレン含量が20重量%未満では耐衝撃性に関して好ましくなく、30重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない場合がある。エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)のMFRが1g/10分未満では剛性及び耐衝撃性に関して好ましくなく、又15g/10分を超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)に対する分散が悪く耐衝撃性に関して好ましい
- 25 結果が得られない場合がある。

このようなエチレンーオクテンランダム共重合体ゴム(2B)、エチレンーブテンランダム共重合体ゴム(2C)、エチレンープロピレンランダム共重合体ゴム(2D)はバナジウム化合物と有機アルミニウム化合物からなる触媒系、チーグラナータ触媒系又はメタロセン触媒系を用いて、溶液重合法、スラリー重合

法、高圧イオン重合法又は気相重合法によって、エチレンと各種の α -オレフィンとを共重合させることによって製造することができる。

本発明の熱可塑性樹脂組成物全体に対するビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー (2) の含有量は10～30重量%である。エラストマーの含有量が10重量%未満の場合、耐衝撃性が低下して好ましくなく、30重量%を超える場合、剛性、耐熱性が低下するので好ましくない。

上記 (2A) ～ (2D) のゴム成分を使用する場合、エラストマーを構成する各種ゴムの組成物全体に対する含有量は、ビニル芳香族化合物含有ゴム (2A) が3～15重量%、エチレン-オクテンランダム共重合体 (2B) が0～15重量%、エチレン-ブテンランダム共重合体 (2C) が0～10重量%、エチレン-プロピレンランダム共重合体 (2D) が0～10重量%であることが好ましい。

上記 (2A) ～ (2D) のゴム成分を使用する場合、エチレン-オクテンランダム共重合体 (2B) を含むことが好ましく、さらにはエチレン-オクテンランダム共重合体 (2B) とエチレン-ブテンランダム共重合体 (2C) の両方を含むことが好ましい。

更に本発明の熱可塑性樹脂組成物は各成分の含有量 (重量%) 及び重量分率が次式1) ～3) を満足することが好ましい。

$$1) (X_{PP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR}) + (X_{talc}) = 100$$

$$2) 0.20 \leq \{ [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100 \} \leq 0.30$$

$$3) 0.1 \leq \{ (Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] \}$$

〔式中、 (X_{PP}) は結晶性ポリプロピレン、 (X_{st}) はビニル芳香族化合物含有ゴム (2A)、 (X_{EOR}) はエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2B)、 (X_{EBR}) はエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム (2C)、及び (X_{EPR}) はエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム (2D) の各含有量 (重量%) を示す。 (Y_{BC}) は結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合

体（1 A）の含有量（重量％）、（ Y_{EP} ）は結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（1 A）中の第2セグメントであるエチレンープロピレンランダム共重合体部分の重量分率（重量分率は含有量（重量％）／100である。）を示し、（ $X_{tal c}$ ）はタルクの含有量（重量％）を示す。]

- 5 上記式2）における、 $[(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100$ が0.20未満では耐衝撃性が低下する傾向にあるので好ましくなく、0.30を超えると流動性が低下する傾向にあるので好ましくない。本発明の熱可塑性樹脂組成物の各成分の重量分率の関係式3）における数値、 $(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st})$
 10 $+ (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})]$ が0.1未満になると耐衝撃性が低下する傾向にあるので好ましくない。

また本発明の熱可塑性樹脂組成物のMFR（JIS-K-6758、230℃）が35g／10分未満では流動性が劣り、成形性が低下する傾向にあるので35g／10分以上が好ましい。

- 15 本発明で使用するタルクは、含水ケイ酸マグネシウムを粉砕したものである。その分子の結晶構造はパイロフィライト型三層構造を示しており、タルクはこの構造が積み重なったものである。特に結晶を単位層程度にまで微粉砕した平板状のものが好ましい。

- 本発明で用いるタルクの平均粒子径は3 μm 以下である。3 μm より大きいものを用いた場合、本発明の熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性の低下が大きく、光沢等の外観も悪くなる。タルクは無処理のまま使用しても良いが結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）との界面接着性を向上させ、また分散性を向上させる目的で公知の各種シランカップリング剤、チタンカップリング剤、高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸塩類あるいは他の界面活性剤で表面
 20 を処理したものを使用することができる。

ここでタルクの平均粒子径とは遠心沈降式粒度分布測定装置を用いて水、アルコール等の分散媒中に懸濁させて測定した篩下法の積分分布曲線から求めた50％相当粒子径D50のことを意味する。

本発明で用いるタルクの含有量は熱可塑性樹脂組成物全体に対して15～25

重量%である。使用するタルクの含有量が15重量%未満の場合、剛性、耐熱性が低下し、一方、25重量%を超えると、耐衝撃性が低下するので好ましくなく、外観も悪化する。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は下記(a)～(c)の条件を満足するものである。即ち、まず、

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12～24nmであることが必要である。

小角X線散乱とは、公知の刊行物、例えば、「X線回折の手引き—理学電機(株)—1989年版」に記載されているとおりであり、2 θ 数度以下の小さな角度領域の散乱であり、その長周期とは数十～数百Å程度の結晶質と非晶質の周期配列である。そして、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は、結晶性ポリプロピレン樹脂に起因する既知の回折ピーク以外の回折ピークをビニル芳香族化合物含有ゴムに起因すると見なすことによって求めることができる。

ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は好ましくは12～23nmである。24nmを超えると結晶性ポリプロピレン系樹脂の長周期から大きく逸脱し、エラストマー相と結晶性ポリプロピレン系樹脂相の界面の接着強度(相互作用)が低下する。

(b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあるエラストマー粒子がマイクロ相分離し粒子の形態をとり、その粒子の径が30nm以下であることが必要である。

エラストマー粒子とマトリックスである結晶性ポリプロピレン樹脂の界面付近の状態及びその界面付近にあるエラストマー粒子のマイクロ相分離の状態は透過型電子顕微鏡(TEM)によって観察することができる。その粒子の形態は透過像を目視又は写真撮影によって判断することができ、その粒子径はその倍率から換

算して求めることができる。

エラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあり、ミクロ相分離し、粒子の形態をとっているエラストマー粒子の粒子径は好ましくは25 nm以下である。エラストマー粒子とマトリックスである結晶性ポリプロピレン樹脂の界面付近にあり、ミクロ相分離したエラストマーが棒状、板状の形態をとったり、粒子の形態であっても、その径が30 nmを超えると熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性の低下を招き、好ましい結果が得られない。

また、(c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g1})と結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)、
10 ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)とを熔融混練させた際の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g2})の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)が、4.0~7.0℃であることが必要である。

15 ここでガラス転移点とは、非晶性高分子におけるガラス転移点であって、非晶性高分子がガラス状からゴム状に(又はその逆に)変化する時の温度であり、損失弾性率の温度分散測定から得られる吸収ピークより求めることができる。結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の場合、多くの場合は結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点1つのみが見られ、これを T_{g1} とする。結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)、
20 ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)とを熔融混練してなるポリマーの場合、結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点とエラストマー部に帰属するガラス転移点の2つが見られるが、これらのうち、結晶性プロピレン単独重合体部に
25 帰属するガラス転移点を T_{g2} とし、この2つのガラス転移点から結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)を求めることができる。

結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)が4.0℃未満では結晶性ポリプロピレン樹脂(1)とビニル芳香族

化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー（２）との親和性が著しく低下し、本発明の熱可塑性樹脂組成物の耐衝撃性の低下を招く。

結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差（ $\Delta T_g =$

- 5 $T_{g1} - T_{g2}$ ）が7.0℃を超えると親和性が過剰となり、本発明の熱可塑性樹脂組成物の剛性、耐熱性の低下を招き、好ましい結果が得られない。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、熱ロールなどの混練機を用いて製造することができる。各成分の混練機への添加、混合は同時に行なってもよく又分割して行なっても良く、例えば下記の方法等が

- 10 挙げられるが、これらに制限されることはない。

（方法１）結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とタルク（３）を混練した後、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー（２）（以下エラストマーと略称する。）を添加する方法。

- 15 （方法２）予め結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）にタルク（３）を高濃度に混練してマスターバッチとし、それを別途結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）やエラストマー（２）等で希釈しながら混練する方法。

（方法３）結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とエラストマー（２）を混練した後、タルク（３）を添加し混練する方法。

- 20 （方法４）予め結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）にエラストマー（２）を高濃度に混練してマスターバッチとし、それに結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）、タルク（３）を添加し混練する方法。

（方法５）予め結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とタルク（３）、結晶性ポリプロピレン系樹脂（１）とエラストマー（２）をそれぞれ混練しておき、最後

- 25 にそれらを合わせて混練する方法。

混練に必要な温度は170～250℃で、好ましくは190～230℃である。混練に必要な時間は1～20分、好ましくは3～15分である。

更に、これらの混練機においてこれらの基本成分以外に、酸化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、顔料、帯電防止剤、銅害防止剤、難燃剤、中和剤、発泡剤、可塑

剤、造核剤、気泡防止剤、架橋剤等の添加剤を本発明の目的に応じ適宜配合することができる。

本発明の熱可塑性樹脂組成物は、一般に採用されている射出成形方法により種々の形状の成形体を製造することができる。得られた射出成形体は、特にドア

- 5 トリム、ピラー、インストルメンタルパネル及びバンパー等の自動車内外装用部品として好適に使用される。

実施例

以下実施例により本発明を説明するが、これらは単なる例示であり、本発明は要旨を逸脱しない限りこれら実施例に限定されるものではない。

- 10 次に実施例における物性値の測定法を以下に示す。

(1) メルトフローレート (MFR)

J I S - K - 6 7 5 8 に規定された方法により 2 . 1 6 k g 荷重下、温度 1 9 0 ° C 又は 2 3 0 ° C で測定した。

(2) 曲げ試験

- 15 J I S - K - 7 2 0 3 に規定された方法により測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは 6 . 4 m m であり、スパン長さ 1 0 0 m m 、荷重速度 2 . 0 m m / 分の条件で曲げ弾性率 (F M) 及び曲げ降伏強度 (F S) を測定した。測定温度は 2 3 ° C であった。

(3) アイゾット衝撃強度 (I Z O D)

- 20 J I S - K - 7 1 1 0 に規定された方法により測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは 6 . 4 m m であり、成形の後にノッチ加工されたノッチ付きの衝撃強度を評価した。測定温度は - 3 0 ° C であった。試験片を恒温槽で 2 時間その温度に保った後に測定した。

(4) 脆化温度 (B P)

- 25 J I S - K - 6 7 5 8 に規定された方法により測定した。射出成形により成形された 2 5 × 1 5 0 × 2 m m の平板から所定の 6 . 3 × 3 8 × 2 m m の試験片を打ち抜き、所定の方法で測定した。

(5) 加熱変形温度 (H D T)

J I S - K - 7 2 0 7 に規定された方法により測定した。ファイバーストレス

は 18.6 kg/cm^2 であった。

(6) 引っ張り試験

ASTM D638に規定された方法により測定した。射出成形により成形された試験片を用いた。試験片の厚みは 3.2 mm 、引っ張り速度は 10 mm/分 で、引っ張り破断点伸び (UE) 及び引っ張り降伏点強度 (YS) を評価した。測定温度は 23°C であった。

(7) 極限粘度

ウベローデ型粘度計を用いて濃度 0.1 、 0.2 及び 0.5 g/dl の3点について還元粘度を測定した。極限粘度は、「高分子溶液、高分子実験学11」

- 10 (1982年共立出版株式会社刊) 第491頁に記載の計算方法すなわち、還元粘度を濃度に対しプロットし、濃度をゼロに外挿する外挿法によって求めた。

結晶性ポリプロピレンについては、溶媒としてテトラリンを溶媒として用い、温度 135°C で測定した。エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム及びエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴムについては、溶媒としてキシレンを用い、温
15 度 70°C で測定した。

(7-1) 結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体の極限粘度

(7-1a) プロピレン単独重合体部分 (第1セグメント) の極限粘度:

$[\eta]_p$

- 20 結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体の第1セグメントであるプロピレン単独重合体部分の極限粘度: $[\eta]_p$ はその製造時に、第一工程であるプロピレン単独重合体部分の重合後に重合槽内よりプロピレン単独重合体を取り出し、取り出されたプロピレン単独重合体の $[\eta]_p$ を測定して求めた。

(7-1b) エチレン-プロピレンランダム共重合体部分 (第2セグメント)

の極限粘度: $[\eta]_{EP}$

- 25 結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体の第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダム共重合体部分の極限粘度: $[\eta]_{EP}$ は、プロピレン単独重合体部分の極限粘度: $[\eta]_p$ とエチレン-プロピレンブロック共重合体全体の極限粘度: $[\eta]_T$ をそれぞれ測定し、エチレン-プロピレンランダム共重合体部分の結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体全体に対する重量比

率：Xを用いて次式から計算により求めた。

$$[\eta]_{EP} = [\eta]_T / X - (1/X - 1) [\eta]_P$$

$[\eta]_P$ ：プロピレン単独重合体部分の極限粘度 (dl/g)

$[\eta]_T$ ：ブロック共重合体全体の極限粘度 (dl/g)

- 5 (7-1c) エチレン-プロピレンランダム共重合体部分の結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体全体に対する重量比率：X

エチレン-プロピレンランダム共重合体部分の結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体全体に対する重量比率：Xは、プロピレン単独重合体部分（第1セグメント）と結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体全体の結晶融解熱量をそれぞれ測定し、次式を用いて計算により求めた。結晶融解熱量は、示差走査型熱分析 (DSC) により測定した。

$$X = 1 - (\Delta H_f)_T / (\Delta H_f)_P$$

$(\Delta H_f)_T$ ：ブロック共重合体全体の融解熱量 (cal/g)

$(\Delta H_f)_P$ ：プロピレン単独重合体部分の融解熱量 (cal/g)

- 15 (8) 結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体のエチレン-プロピレンランダム共重合体部分のエチレン含量： $(C2')_{EP}$

結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体のエチレン-プロピレンランダム共重合体部分のエチレン含量： $(C2')_{EP}$ は、赤外線吸収スペクトル法により結晶性エチレン-プロピレンランダム共重合体全体のエチレン含量 ($C2'$)_T (重量%) を測定し、次式を用いて計算により求めた。

- 20 $(C2')_T$ (重量%) を測定し、次式を用いて計算により求めた。

$$(C2')_{EP} = (C2')_T / X$$

$(C2')_T$ ：ブロック共重合体全体のエチレン含量 (重量%)

$(C2')_{EP}$ ：エチレン-プロピレンランダム共重合体部分のエチレン含量 (重量%)

- 25 X：エチレン-プロピレンランダム共重合体部分の結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体全体に対する重量比率

(9) アイソタクチック・ペンタッド分率

アイソタクチック・ペンタッド分率とは、A. Zambelliらによって *Macromolecules*, 6, 925 (1973) に発表されている方法、

すなわち ^{13}C -NMRを使用して測定されるポリプロピレン分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖、換言すればプロピレンモノマー単位が5個連続してメソ結合した連鎖の中心にあるプロピレンモノマー単位の分率である。ただし、NMR吸収ピークの帰属に関しては、その後発刊された

5 *Macromolecules*, 8, 687 (1975) に基づいて行った。

具体的には ^{13}C -NMRスペクトルのメチル炭素領域の全吸収ピーク中のmmmピークの面積分率としてアイソタクチック・ペンタッド分率を測定した。この方法により英国NATIONAL PHYSICAL LABORATORYのNPL標準物質CRM No. M19-14 Polypropylene

10 PP/MWD/2のアイソタクチック・ペンタッド分率を測定したところ、0.944であった。

(10) 分子量分布

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 法により、下記の条件(10-1)又は(10-2)で測定した。

15 (10-1) 結晶性ポリプロピレン

GPC: Waters社製 150C型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 2本

サンプル量: 300 μl (ポリマー濃度0.2 wt %)

流 量: 1 ml/min

20 温 度: 135°C

溶 媒: o-ジクロロベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求め、分子量分布 (Q値) は重量平均分子量/数平均分子量から求めた。

25 (10-2) エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴム

GPC: Waters社製 150C型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 1本

サンプル量: 300 μl (ポリマー濃度0.2 wt %)

流 量: 1 ml/min

温 度：145℃

溶 媒：o-ジクロルベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。
検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求め、

- 5 分子量分布（Q値）は重量平均分子量／数平均分子量から求めた。

（11）小角X線散乱で得られる長周期

X線回析測定装置（理学電機製ローターフレックスRU200B）を使用し、
下記の条件で測定した。

対陰極：Cu回転対陰極

- 10 検出器：PSPC、カメラ長：1356mm

X線強度：50KV－100mA、照射時間：8Hr

（12）マイクロ相分離したエラストマーの粒子経

透過型電子顕微鏡（日立製TEM-H8000）を使用し、下記の条件で測定した。

- 15 加速電圧：200KV

染色法：RuO₄－1%水溶液による蒸気中で60℃－2時間。

サンプル調製：ウルトラマイクロトームを用い、ダイヤモンドナイフにより－50～－70℃の温度下で0.6mm／秒 の速度で切削し、厚み80～90nmのサンプルを調製した。

- 20 （13）ガラス転移点（T_g）及び差（ΔT_g）

固体粘弾性測定装置により測定し、以下に示す条件で行った。

固体粘弾性測定装置：セイコー電子工業社製スペクトロメーターSD5600

周波数：5Hz

測定温度：－150℃～80℃

- 25 ガラス転移点（T_g）：損失弾性率の温度分散測定から得られる吸収ピークより求めた。

差（ΔT_g = T_{g1}－T_{g2}）：結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）の結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点（T_{g1}）、結晶性ポリプロピレン系樹脂（1）、ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴ

ム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー
(2)、及びタルク(3)とを熔融混練させた際の結晶性プロピレン単独重合体
部に帰属するガラス転移点(T_{g2})の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)を求めた。

(14) 外観

- 5 射出成形により成形された試験片を用いて目視により観察し、外観良好と外観不良の判定した。

上記(2)、(3)、(4)、(5)及び(6)の物性評価用試験片は、次の
射出成形条件下で作製した。組成物を熱風乾燥器で120℃で2時間乾燥後、東
芝機械製IS150E-V型射出成形機を用い成形温度220℃、金型冷却温度
10 50℃、射出時間15sec、冷却時間30secで射出成形を行った。

- 以下の実施例及び比較例記載の熱可塑性樹脂組成物は、次のような条件で製造
した。各成分の所定量を計量し、ヘンシェルミキサー及びタンブラーで均一に予
備混合した後、二軸混練押出機(日本製鋼所社製TEX44SS 30BW-2
V型)にて押出量50kg/hr、スクリー回転数350rpm、ベント吸引
15 下で行った。スクリーは三条タイプのローターとニーディングディスクを混練
ゾーン2ヶ所、おのおの第1フィードロ、第2フィードロの次のゾーンに配置し
て構成した。

表1：結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性

- 本発明の実施例及び比較例で使用した結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性を表
20 1に示した。使用したサンプルは結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体
(BCという)とプロピレン単独重合体(PPという)で、BCのプロピレン単
独重合体部分とPP全体(P部という)のGPC法によるQ値、極限粘度 $[\eta]$
P、及びアイソタクチック・ペンタッド分率mmmmを示した。また、BCのエ
チレン-プロピレンランダム共重合体部分(EP部という)の極限粘度 $[\eta]$ E
25 P、BC中のEP部の含量(含量1という)、及びEP部におけるエチレン含量
(含量2という)を示した。

表2：ビニル芳香族化合物含有ゴム、エチレン- α -オレフィンランダム共重
合体ゴムの物性

本発明の実施例及び比較例で使用したゴムの物性を表2に示した。使用したゴ

ムは、エチレンーブテンランダム共重合体ゴム（E B R-1 という）、2 種類のエチレンーオクテンランダム共重合体ゴム（E O R-1、及び-2）、4 種類のスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（S E B S-1、-2、-3、及び4）であった。それらのMFRを示した。また、E B R-1、
5 E O R-1、及び2についてはコモノマー含量を、S E B S-1、-2、-3、及び4についてはスチレン含量を示した。

表3：結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの配合割合

表1記載の結晶性ポリプロピレン系樹脂と表2記載のエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件（a）及び（b）について検討した。その際に用いた
10 ポリマーとその配合割合を表3に示した。

表4：結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの熔融混練ポリマーの特性
表3記載のポリマー種と配合割合からなるポリマーを二軸混練機で熔融混練し、
所定の条件でプレス成形して試験片を用意した。その試験片を用いて得られた小
角X線散乱による長周期とTEMによるエラストマーの粒子径の評価結果を表4
15 に示した。

参考例1

結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（B C）47重量部、プロピレン単独重合体（P P）38重量部及びスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（S E B S-1）15重量部を二軸混練機で熔融混練し、
20 所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は22nmであった。この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、マイクロ相分離したエラストマー粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は2
25 0nmであった。即ち、本参考例1で用いたスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（S E B S-1）は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件（a）及び（b）を満足した。

参考例2

結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（B C）47重量部、プロピレ

ン単独重合体（PP）38重量部及びスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-2）15重量部を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は21nmであった。

- 5 この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、マイクロ相分離したエラストマー微粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は18nmであった。即ち、本参考例2で用いたスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-2）は、結晶性ポリプロピレン系樹脂
10 とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件（a）及び（b）を満足した。

参考例3

- 結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（BC）47重量部、プロピレン単独重合体（PP）38重量部、エチレンーオクテンランダム共重合体（EOR-1）7重量部及びスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体
15 ゴム（SEBS-1）8重量部を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は23nmであった。この値はポリプロピレンの長周期により近接した好ましい値であった。また、TEMでエラスト
20 マー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、マイクロ相分離したエラストマー粒子は微細な粒子の形態をなしており、その粒子径は20nmであった。即ち、本参考例3で用いたスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-1）は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを
25 熔融混練した際に満足すべき条件（a）及び（b）を満足した。

参考例4

結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体（BC）47重量部、プロピレン単独重合体（PP）38重量部及びスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム（SEBS-3）15重量部を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定

したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は26 nmであった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、ミクロ相分離したエラストマー粒子には棒状のものが混在していた。即ち、本参考例4で用いたスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム

5 (SEBS-3) は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件(a)及び(b)を満足しなかった。

参考例5

結晶性エチレンープロピレンブロック共重合体(BC)47重量部、プロピレン単独重合体(PP)38重量部及びスチレンーエチレンーブテンスチレンブ

10 ロック共重合体ゴム(SEBS-4)15重量部を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で試験片をプレス成形した。その試験片を用いて、小角X線散乱を測定したところ、ビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期は25 nmであった。また、TEMでエラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近を観察したところ、ミクロ相分離したエラストマー粒子は棒状のものであった。即ち、本参考例5で

15 用いたスチレンーエチレンーブテンスチレンブロック共重合体ゴム(SEBS-4)は、結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーとを熔融混練した際に満足すべき条件(a)及び(b)を満足しなかった。

表5：結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー及びタルクの配合割合

表1記載の結晶性ポリプロピレン系樹脂、表2記載のエラストマー及びタルク

20 とを熔融混練した際に満足すべき条件(c)について検討した。その際に用いたポリマーの種類、そしてタルクとの配合割合を表5に示した。

表6：結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー及びタルクの熔融混練ポリマーのガラス転移点の差(ΔT_g)と組成物の物性

表5記載のポリマー種とタルク、その表に記載の配合割合からなるポリプロピ

25 レン系樹脂組成物を二軸混練機で熔融混練し、所定の条件で射出成形して試験片を用意した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差(ΔT_g)、及びその組成物の物性をの評価結果を表6に示した。

実施例1

結晶性プロピレンーエチレンブロック共重合体（BC）30重量部、プロピレン単独重合体（PP）25重量部、エチレンーオクテンランダム共重合体ゴム（EOR-2）7.4重量部、エチレンーブテンー1ランダム共重合体ゴム（EBR-1）9.0重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム（SEBS-2）7.6重量部及び平均粒子径 $2.5\mu\text{m}$ のタルク21重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差（ ΔT_g ）は 5.8°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件（c）を満足した。また、その組成物のMFRは $38\text{g}/10\text{分}$ （測定温度 230°C ）で、物性は表6に示した。

実施例 2

結晶性プロピレンーエチレンブロック共重合体（BC）30重量部と、プロピレン単独重合体（PP）26重量部、エチレンーオクテンランダム共重合体ゴム（EOR-1）7.4重量部、エチレンーブテンー1ランダム共重合体ゴム（EBR-1）8.0重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム（SEBS-2）7.6重量部及び平均粒子径 $2.5\mu\text{m}$ のタルク21重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差（ ΔT_g ）は 5.8°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件（c）を満足した。また、その組成物のMFRは $42\text{g}/10\text{分}$ （測定温度 230°C ）で物性は表6に示した。

実施例 3

結晶性プロピレンーエチレンブロック共重合体（BC）30重量部、プロピレン単独重合体（PP）25重量部、エチレンーオクテンランダム共重合体ゴム（EOR-1）9.0重量部、エチレンーオクテンランダム共重合体ゴム（EOR-2）9.0重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム（SEBS-1）6.0重量部及び平均粒子径 $2.5\mu\text{m}$ のタルク21重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転

移点の差 (ΔT_g) は 5.3℃で、結晶性プロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 42 g / 10 分 (測定温度 230℃) で、物性は表 6 に示した。

実施例 4

- 5 結晶性プロピレン-エチレンブロック共重合体 (BC) 30 重量部、プロピレン単独重合体 (PP) 26 重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-2) 23 重量部及び平均粒子径 2.5 μ m のタルク 21 重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 4.5℃で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 46 g / 10 分 (測定温度 230℃) で物性は表 6 に示した。

実施例 5

- 15 結晶性プロピレン-エチレンブロック共重合体 (BC) 30 重量部、プロピレン単独重合体 (PP) 26 重量部、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-2) 15.4 重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-2) 7.6 重量部及び平均粒子径 2.5 μ m のタルク 21 重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.6℃で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足した。また、その組成物の MFR は 42 g / 10 分 (測定温度 230℃) で物性は表 6 に示した。

25 比較例 1

結晶性プロピレン-エチレンブロック共重合体 (BC) 30 重量部、プロピレン単独重合体 (PP) 26 重量部、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) 7.4 重量部、エチレン-ブテン-1 ランダム共重合体ゴム (EBR-1) 8.0 重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-3) 7.6

重量部及び平均粒子径 2.5 μm のタルク 21 重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 3.2°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足しなかった。また、その組成物の MFR は 38 g / 10 分 (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

比較例 2

10 結晶性ポリプロピレン-エチレンブロック共重合体 (BC) 30 重量部、ポリプロピレン単独重合体 (PP) 26 重量部、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (EOR-1) 7.4 重量部、エチレン-ブテン-1 ランダム共重合体ゴム (EBR-1) 8.0 重量部、ビニル芳香族化合物含有ゴム (SEBS-4) 7.6 重量部及び平均粒子径 2.5 μm のタルク 21 重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。15 その試験片を用いて得られた結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差 (ΔT_g) は 5.0°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件 (c) を満足しなかった。また、その組成物の MFR は 39 g / 10 分 (測定温度 230°C) で、物性は表 6 に示した。

20 比較例 3

本発明で使用するビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーの代わりに、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーを用いた場合 (ビニル芳香族化合物含有ゴムを使用しない場合)、即ち、結晶性25 プロピレン系樹脂、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー、及びタルクからなる熱可塑性樹脂組成物について、その物性を示した。

結晶性ポリプロピレン-エチレンブロック共重合体 (BC) 30 重量部、ポリプロピレン単独重合体 (PP) 26 重量部、エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム

(EOR-1) 23重量部及び平均粒子径 $2.5\mu\text{m}$ のタルク21重量部を所定の条件で二軸混練機で熔融混練し、得られたポリプロピレン系樹脂組成物から試験片を射出成形した。その試験片を用いて得られた結晶性ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差(ΔT_g)は 3.9°C で、結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクとを熔融混練した際に満足すべき条件(c)を満足しなかった。また、その組成物のMFRは $39\text{ g}/10\text{分}$ (測定温度 230°C)で、物性は表6に示した。

結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)、エラストマー(2)及びタルク(3)からなる熱可塑性樹脂組成物において、結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とエラストマー(2)とを熔融混練した際の条件(a)及び(b)、更に結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とエラストマー(2)とタルク(3)とを熔融混練してなる組成物の条件(c)を満足しなかった組成物である比較例1、及び条件(c)は満足するものの、条件(a)及び(b)を満足しなかった組成物である比較例2に比べて、条件(a)、(b)及び(c)を満足する実施例1、2、3、4及び5は表6に示したとおり各物性が著しく低下することなく優れた物性であり、それらのバランスが保たれており、また、外観も良好であることがわかる。

実施例1、2、3、4及び5は、比較例1及び2に比べてその物性において、特に引張り破断点強度(UE)、アイゾット衝撃強度(IZOD)及び脆化温度(BP)が改良されていることがわかる。そして、その改良によって、その他の物性が著しく低下することはない、物性のバランスが保たれていることがわかる。

実施例1、2、3、4及び5は、比較例3に比べてその物性において、特に、脆化温度(BP)がより低い値を示していることがわかる。即ち、ビニル芳香族化合物含有ゴムを用いて得られる樹脂組成物が条件(a)、(b)及び(c)を満足する場合、ビニル芳香族化合物含有ゴムを用いずエチレン- α -オレフィンランダム共重合体のみを用いて得られる樹脂組成物より、物性が優れており、また、外観も良好であることがわかる。

表 1 結晶性ポリプロピレン系樹脂の物性

サンプル	P 部			E P 部		
	Q 値	$[\eta]_P$ (dl/g)	mmmm	$[\eta]_{EP}$ (dl/g)	含量 1 (重量%)	含量 2 (重量%)
BC	4. 0	0. 8	0. 99	6	1 1	3 2
PP	4. 0	0. 8	0. 99			

BC : エチレン-プロピレンブロック共重合体

PP : プロピレン単独重合体

P 部 : BC のプロピレン単独重合体部分あるいは PP の全体

5 EP 部 : BC のエチレン-プロピレンランダム共重合体部分

含量 1 : BC における EP 部の含量

含量 2 : EP 部におけるエチレン含量

mmmm : アイソタクチックペンタッド分率

10 表 2 ビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムの物性

サンプル	MFR		モノマー含量 (重量%)	スチレン含量 (重量%)
	測定温度190℃ (g/10分)	測定温度230℃ (g/10分)		
EBR-1	2		3 2	
EOR-1	2		4 0	
EOR-2	5		2 4	
SEBS-1		9		1 3
SEBS-2		6		1 8
SEBS-3		0. 8		2 0
SEBS-4		0. 8		4 0

EBR-1 : エチレン-1-ブテン共重合体ゴム

EOR-1、2 : エチレン-1-オクテン共重合体ゴム

SEBS-1、2、3、4 : ビニル芳香族化合物含有ゴム

表3 結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの配合割合

	BC	PP	EOR-1	SEBS-1	SEBS-2	SEBS-3	SEBS-4
参考例1	4 7	3 8		1 5			
参考例2	4 7	3 8			1 5		
参考例3	4 7	3 8	7	8			
参考例4	4 7	3 8				1 5	
参考例5	4 7	3 8					1 5

表4 結晶性ポリプロピレン系樹脂とエラストマーの熔融混練ポリマーの特性

	小角X線散乱による長周期 (nm) *	TEMによるエラストマーの粒 子径 (nm) **
参考例1	2 2	2 0
参考例2	2 1	1 8
参考例3	2 3	2 0
参考例4	2 6	棒状及び粒子
参考例5	2 5	棒状

* : 結晶性ポリプロピレン系樹脂にエラストマーを熔融混練させた際のビニル

5 芳香族化合物含有ゴムに起因する長周期

** : 分散エラストマー粒子とポリプロピレンの界面付近にあるミクロ相分離したエラストマーの粒子径

表5 結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー及びタルクの配合割合

	組成 (wt%)									
	BC	PP	EOR-1	EOR-2	EBR-1	SEB S-1	SEB S-2	SEB S-3	SEB S-4	タルク
実施例1	30	25		7.4	9.0		7.6			21
実施例2	30	26	7.4		8.0		7.6			21
実施例3	30	25	9.0	9.0		6.0				21
実施例4	30	26					23			21
実施例5	30	26	15.4				7.6			21
比較例1	30	26	7.4		8.0			7.6		21
比較例2	30	26	7.4		8.0				7.6	21
比較例3	30	26	23							21

表6 結晶性ポリプロピレン系樹脂、エラストマー、及びタルクの溶融混練ポリマーのガラス転移点の差 (ΔT_g) と組成物の物性

	ΔT_g	MFR	YS	UE	FM	FS	IZOD	HDT	BP	外観
実施例1	5.8	38	207	220	21100	313	4.5	72	-22	良好
実施例2	5.8	42	198	263	22100	309	4.9	72	-23	良好
実施例3	5.3	42	202	173	20000	303	4.5	71	-23	良好
実施例4	4.5	46	196	500	20700	310	5.9	72	-32	良好
実施例5	5.6	42	199	353	21800	306	5.3	73	-25	良好
比較例1	3.2	38	200	80	23200	310	4.2	73	-19	—
比較例2	5.0	39	206	62	23100	316	3.6	73	-13	—
比較例3	3.9	39	200	240	22100	306	4.5	73	-21	不良

MFR : メルトフローレート ($\text{g} / 10 \text{分}$) : 測定温度 230°C

YS : 引張り降伏点強度 (Kg / cm^2)

5 UE : 引張り破断点伸び (%)

FM : 曲げ弾性率 (Kg / cm^2)

FS : 曲げ降伏点強度 (Kg / cm^2)

IZOD : アイゾット衝撃強度 ($\text{Kg} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2$)

HDT : 加熱変形温度 ($^\circ\text{C}$)

10 BP : 脆化温度 ($^\circ\text{C}$)

ΔT_g : ポリプロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点の差 ($^\circ\text{C}$)

産業上の利用可能性

本発明によるポリプロピレン樹脂組成物は、剛性、衝撃強度等の物性、及び流れ性等の加工性、成形性に優れ、加工成形品の外観も優れている。

15 本発明により提供されるポリプロピレン樹脂組成物はかかる物性を利用して射出成形品、特に自動車内外装用成形体に好適に用いられる。

請 求 の 範 囲

1. (1) 結晶性ポリプロピレン系樹脂 55～75重量%、(2) ビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー 10～30重量%、及び(3) 平均粒径 3 μ m以下のタルク 15～25重量%とを熔融混練して得られる組成物であって、かつ下記(a)～(c)の条件を満足することを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

(a) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のビニル芳香族化合物含有ゴムに起因する小角X線散乱で得られる長周期が12～24 nmであること。

(b) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)とビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)とを熔融混練させた際のエラストマー粒子とマトリックスであるポリプロピレンの界面付近にあるエラストマー粒子がマイクロ相分離し、粒子の形態をとり、その粒子径が30 nm以下であること。

(c) 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g1})と結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)にビニル芳香族化合物含有ゴム又はビニル芳香族化合物含有ゴム及びエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマー(2)及びタルク(3)を熔融混練してなる組成物の結晶性プロピレン単独重合体部に帰属するガラス転移点(T_{g2})の差($\Delta T_g = T_{g1} - T_{g2}$)が、4.0～7.0℃であること。

2. 結晶性ポリプロピレン系樹脂(1)が下記(1A)又は(1B)から選ばれた結晶性ポリプロピレンであることを特徴とする請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

(1A) 第1セグメントであるプロピレン単独重合体部分のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法による重量平均分子量(M_w)／数平均分子量(M_n)比であるQ値が3.0～5.0、 ^{13}C -NMRにより計算される

- アイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液中の極限粘度が0.7~1.1 dl/gであり、第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダム共重合体部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度が5.0~8.0 dl/g、エチレン/プロピレンの割合が25/75~35/65（重量比）である結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体。
- 5

（1B）結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体（1A）とGPC法によるQ値が3.0~5.0、¹³C-NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.7~1.1 dl/gである結晶性プロピレン単独重合体との混合物。

- 10 3. エラストマー（2）がビニル芳香族化合物含有ゴム及び1種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーであることを特徴とする請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物。

4. エラストマー（2）がビニル芳香族化合物含有ゴム及び2種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムからなるエラストマーであることを特徴とする請求項3記載の熱可塑性樹脂組成物。
- 15

5. エラストマー（2）が下記（2A）ビニル芳香族化合物含有ゴムと、（2B）エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム、（2C）エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム、又は（2D）エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴムから選ばれた2種類以上のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体ゴムとからなるエラストマーであり、各ゴム成分の組成物全体に対する含有量が下記の含有量であることを特徴とする請求項4記載の熱可塑性樹脂組成物。
- 20

（2A）ビニル芳香族化合物含有ゴム：3~15重量%

- ビニル芳香族化合物重合体ブロックと共役ジエン系重合体ブロックからなるブロック共重合体であって、共役ジエン部分の二重結合が80%以上水素添加され、かつ、GPC法によるQ値が2.5以下、ビニル芳香族化合物含量が10~20重量%、メルトフローレート（JIS-K-6758、230℃）が1~15 g/10分であるビニル芳香族化合物含有ゴム。
- 25

（2B）エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム：0~15重量%

GPC法によるQ値が2.5以下、オクテン含量が15~45重量%、メルト

フローレート (J I S-K-6 7 5 8、1 9 0℃) が 1～1 5 g/1 0 分であるエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム。

(2 C) エチレン-ブテンランダム共重合体ゴム：0～1 0 重量%

5 G P C法によるQ値が2. 7以下、ブテン含量が1 5～3 5 重量%、メルトフローレート (J I S-K-6 7 5 8、1 9 0℃) が 1～1 5 g/1 0 分であるエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム。

(2 D) エチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム：0～1 0 重量%

10 G P C法によるQ値が2. 7以下、プロピレン含量が2 0～3 0 重量%、メルトフローレート (J I S-K-6 7 5 8、1 9 0℃) が 1～1 5 g/1 0 分であるエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム。

6. エチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2 B) の組成物全体に対する含有量が5～1 5 重量%であることを特徴とする請求項 5 記載の熱可塑性樹脂組成物。

15 7. 熱可塑性樹脂組成物が次式 1)～3) を満足し、かつ該熱可塑性樹脂組成物のメルトフローレート (J I S-K-6 7 5 8、2 3 0℃) が 3 5 g/1 0 分以上であることを特徴とする請求項 5 又は 6 記載の熱可塑性樹脂組成物。

$$1) (X_{PP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR}) + (X_{talc}) = 100$$

$$20 \quad 2) 0.20 \leq \{ [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] / 100 \} \leq 0.30$$

$$3) 0.1 \leq \{ (Y_{BC}) \times (Y_{EP}) / [(Y_{BC}) \times (Y_{EP}) + (X_{st}) + (X_{EOR}) + (X_{EBR}) + (X_{EPR})] \}$$

[式中、(X_{PP})は結晶性ポリプロピレン、(X_{st})はビニル芳香族化合物含有ゴム (2 A)、(X_{EOR})はエチレン-オクテンランダム共重合体ゴム (2 B)、(X_{EBR})はエチレン-ブテンランダム共重合体ゴム (2 C)、及び (X_{EPR})はエチレン-プロピレンランダム共重合体ゴム (2 D) の含有量 (重量%)を示す。(Y_{BC})は結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体 (1 A) の含有量 (重量%)、(Y_{EP})は結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体 (1 A) 中の第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダム共

25

重合体部分の重量分率（重量分率は含有量（重量％）／１００である。）を示し、
（ X_{tal_c} ）はタルクの含有量（重量％）を示す。]

８．請求項１～７記載の熱可塑性樹脂組成物を射出成形することにより得られる射出成形体。

５ ９．射出成形体が自動車内外装用射出成形体である請求項８記載の射出成形体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02665

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C08L23/10, C08K3/34, B29C45/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C08L23/10, C08K3/34, B29C45/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 7-138421, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 30 May, 1995 (30.05.95), All specification (Family: none)	1-9
X	JP, 6-9836, A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 18 January, 1994 (18.01.94), All specification (Family: none)	1-9
A	WO, 97/38050, A1 (Sumitomo Chemical Company, Limited, Toyota Motor Corporation), 16 October, 1997 (16.10.97), All specification & JP, 9-278954, A & KR, 99022441, A	1-9



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
18 July, 2000 (18.07.00)

Date of mailing of the international search report
01 August, 2000 (01.08.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/02665

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C08L23/10, C08K3/34, B29C45/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ C08L23/10, C08K3/34, B29C45/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 7-138421, A (旭化成工業株式会社) 30. 5月. 1995 (30. 05. 95), 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
X	JP, 6-9836, A (積水化学工業株式会社) 18. 1月. 1994 (18. 01. 94), 全明細書 (ファミリーなし)	1-9
A	WO, 97/38050, A1 (住友化学工業株式会社, トヨタ自動車株式会社) 16. 10月. 1997 (16. 10. 97), 全明細書 & JP, 9-278954, A & KR, 99022441, A	1-9

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 07. 00

国際調査報告の発送日

01. 08. 00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

三谷 祥子

4 J

9362

電話番号 03-3581-1101 内線 6832

